

[SUMMARY OF PUBLICATION NUMBER 1998-0078123]

[Abstract]

The present invention provides a method of preparing  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  powder, which comprises the steps of providing a gel precursor using PAA(Polyacrylic acid) as a chelating agent and hydroxide, nitrate or acetate of Li, Co and Ni as metal precursors; calcining the gel precursor at  $200\sim 800^\circ\text{C}$ . for 5~30 hours to form a powder under atmosphere or inert gases. The  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  powder of the present invention can be used for a cathode active material of a lithium secondary battery.

공개특허특1998-078123

(19)대한민국특허청(KR)  
(12) 공개특허공보(A)(51) Int. Cl. 6  
B22F 9/00(11) 공개번호 특1998-078123  
(43) 공개일자 1998년11월16일(21) 출원번호 특1997-015555  
(22) 출원일자 1997년04월25일(71) 출원인 삼성전관 주식회사 손욱  
경기도 수원시 팔달구 신동 575  
(72) 발명자 선양국  
대전광역시 서구 둔산동 912번지 동지 APT 112-601  
김영록  
대전광역시 유성구 어은동 한빛 APT 107-601  
(74) 대리인 최덕규

심사청구 : 있음

(54) 졸-겔(sol-gel)법을 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말 제조방법

## 요약

본 발명은 졸-겔(sol-gel)법을 이용한 리튬 이차전지용 양극활물질인  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말 제조 및 합성 양극 (composite cathode)의 전기화학 특성을  $\text{Li}/1\text{M LiClO}_4\text{-EC/PC}$  전해질/ $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  전지를 이용하여 조사한 것이다. 본 발명에서는 음이온 혼합(cation mixing)이 적고 순수한 상(phase-pure)의  $\text{LiNi}$

$_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말을 제조하는 것으로 킬레이트제로는 폴리아크릴산(polyacrylic acid)을 금속전구체로는 리튬(Li), 코발트(Co) 및 니켈(Ni) 질산염을 전구체로 사용하여  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말을 제조하였으며, 그 물리화학적 특성을 TG/DTA, XRD 및 SEM을 이용하여 분석하였으며, 전지의 충·방전 특성은  $\text{Li}/1\text{M LiClO}_4\text{-EC/PC}$  용액/ $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  전지를 이용하여 조사하였다. 본 발명의  $\text{LiNi}$

$_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말을 소성온도 및 시간을 변화시켜 입자크기, 미세 결정질 조직(microcrystalline morphology) 등과 같은 물리화학적인 특성치를 조절하였다.

## 대표도

도1

## 명세서

[발명의 명칭] 졸-겔(sol-gel)법을 이용한 리튬 이차전지용 양극 활물질  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말 제조방법.[도면의 간단한 설명] 제 1도는 본 발명에 따른 제조공정을 나타낸 졸-겔법에 의한  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말제조 공정도이다.제 2도는 본 발명에 따른 겔 전구체로부터 세라믹스의 변화 과정을 나타낸 TG 및 DTA곡선을 나타낸 도표이다(승온속도  $5^\circ\text{C}/\text{min}$ ).제 3도는 본 발명에 따른 겔 전구체로부터 공기중에 1시간동안(a)  $500^\circ\text{C}$ , (b)  $600^\circ\text{C}$ , (c)  $700^\circ\text{C}$  및 (d)  $850^\circ\text{C}$ 에서 소성한  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말의 XRD도표이다.제 4도는 본 발명에 따른 공기중에 1시간동안 (a)  $500^\circ\text{C}$ , (b)  $600^\circ\text{C}$  및 (c)  $700^\circ\text{C}$ 에서 소성한  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말 시료의 표면을 나타내는 SEM 사진이다.

제 5도는 본 발명에 따른 750℃에서 소성한  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말을 이용한  $\text{Li}/1\text{M LiClO}_4\text{-EC/PC}$  용액/ $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  전지의 전압범위 3.0~4.25V 사이에서 일정전류밀도 0.25 mA/cm

<sup>2</sup>으로 실험한 (a)사이클링(cycling)에 따른 충·방전그래프 및 (b) 사이클(cycle)에 따른 방전용량을 나타낸 도표이다.

[발명의 상세한 설명][발명의 분야]본 발명은 리튬 이차전지용 양극 활물질  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말제조에 관한 것이다.

보다 구체적으로 본 발명은 리튬 이차전지인 리튬 이온전지 및 리튬 폴리머전지용 양극 활물질인  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말 제조방법 및 합성 음극(composite cathode)의 전기화학적 특성을  $\text{Li}/1\text{M LiClO}_4\text{-EC/PC}$  전해질/ $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  전지를 이용하여 조사한 것이다.

[발명의 배경]본 발명에서의  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말의 가장 일반적인 제조방법으로는 고상반응법인데, 이 방법은 각 구성원소의 탄산염 및 수산화물을 원료로하여 이들의 분말을 혼합·소성하는 과정을 수차례 거쳐 제조하는 것이다.

세라믹 제조분야에서는 졸-겔(sol-gel)법이 개발되는 중이며, 그 방법은 금속알콕사이드를 용매에 용해후 가수분해 및 중합반응을 통하여 졸(sol)상태로 하고, 이 분산액의 온도, 농도 및 그 외의 조건을 변화시켜 겔(gel)과 시켜서 건조 및 열처리 공정을 거쳐 세라믹 분말을 얻는 것이다.

고상반응법의 단점을 혼합시 볼밀(ball mill)로부터의 불순물 유입이 많으며 불균일 반응이 일어나기 쉬워 균일한 상을 얻기 어렵고, 분말입자의 크기를 일정하게 제어하기 곤란하여 소결성이 떨어지며, 제조시 높은 온도 및 제조시간이 길다.

금속 알콕사이드를 이용한 졸-겔(sol-gel)법은 금속알콕사이드 가격이 너무고가여서 경제성이 맞지 않는다. 따라서 최근에는 금속전구체로 금속 질산염(nitrate), 초산염(acetate) 및 황산염(sulfate)을 이용하고 킬레이트제(chelating agent)로 구연산 및 에틸렌글리콜을 이용한 구연산법, 페치니(pechini)법 등이 널리 연구되고 있다. 제조된 분말의 물성은 킬레이트제 종류에 따라 다르므로 적절한 킬레이트제 선정이 필요하다.

[발명의 목적]본 발명의 목적은 킬레이트제(chelating agent)로 폴리아크릴산(polyacrylicacid)을 사용하고, 금속전구체로는 리튬(Li), 코발트(Co) 및 니켈(Ni) 질산염을 전구체로 사용한 졸-겔(sol-gel)법을 이용하여  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말을 제조하기 위한 것이다.

본 발명의 다른 목적은 킬레이트제로 폴리아크릴산을 사용하여 양이온 혼합(cation mixing)이 적고 순수한 상(phase-pure)의  $\text{Li}_x\text{Mn}_2\text{O}_4$  분말을 제조하기 위한 것이다.

본 발명의 또 다른 목적은 킬레이트제로 폴리아크릴산을 사용하여 졸-겔(sol-gel)법으로 제조하여 그 물리화학적 특성 및 전지의 충·방전 특성을 조사하기 위한 것이다.

[발명의 요약]본 발명은 졸-겔(sol-gel)법을 이용하여 리튬 이차전지용 양극활물질인  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말을 킬레이트제(chelating agent)로는 폴리아크릴산을 사용하고, 금속전구체로는 리튬(Li), 코발트(Co), 및 니켈(Ni)의 수산화염, 질산염 또는 초산염을 전구체로 사용하여 겔(gel)전구체로 만든 후, 이 겔전구체 250~900℃에서 1~30시간 열처리하여  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말을 제조하였다.

본 발명에서는 킬레이트제로 폴리아크릴산을 이용하여 양이온 혼합이 적고 순수한 상(phase-pure)의  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말을 제조하였으며, 소성온도와 시간을 변화시켜 입자크기 및 미세결정 조직(microrystalline morphology)등과 같은 물리화화학적 특성치를 조절하였다.

상기 리튬(Li), 코발트(Co) 및 니켈(Ni)질산염 1:0.5:0.5의 몰비로 정량하는 것이 바람직하다. 본 발명의  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말은 리튬이차전지인 리튬이온전지 또는 리튬폴리머전지의 양극활물질로 사용된다. 본 발명의  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$ 의 용액을 졸(sol) 및 겔(gel)상태로 하여 박막을 제조할 수 있다.

[발명의 구체예에 대한 상세한 설명]리튬 이차전지는 에너지 밀도, 높은 작동전압, 비 메모리(no memory) 효과 등의 여러가지 특성이 기존의 이차전지에 비해 우수하므로 미래의 휴대용 전원으로서 크게 각광을 받고 있다. 리튬 이차전지의 연구는 1970년대부터 활발히 진행되기 시작되었으나, 1990년대 초반 소니(SONY)를 선두로 카본을 음극재료로 하고 Li

$x\text{CoO}_2\text{O}_4$ ,  $\text{Li}_x\text{Mn}_2\text{O}_2$ ,  $\text{Li}_x\text{Mn}_2\text{O}_4$  등 금속산화물을 양극재료로 하는 소위 리튬이온전지가 등장하게 되었다. 이 중에서 양극(anode)은 음극의 이론용량이 372 mAh/g(LiC

<sub>6</sub> 기준)임에 비해 148~274 mAh/g으로 상대적으로 낮고 실제 사용용량은 110~200mAh/g으로 보다 큰 용량을 갖는 새로운 양극 물질의 개발과 아울러 이론용량을 더 많이 활용할 수 있도록 기존양극 물질의 물성 개선등이 시급한 실정이다. 현재로 사용중이거나 사용가능성이 대두되고 있는 리튬(Li) 이차전지의 양극재료로는 LiCoO

<sub>2</sub>, LiNiO<sub>2</sub>, LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 과 같은 전이금속 산화물 및  $\text{LiM}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_2$ ,  $\text{LiM}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_2$ (여기서, M=Ni, Co, Fe, Mn, Cr 등의 금속)과 같은 산화물 고용체등을 들 수 있다. 현재 가장 널리 사용되는 양극 물질로는 LiCoO

<sub>2</sub>이다. 그러나 LiCoO

<sub>2</sub>는 양극(cathode)으로서의 성능은 우수하나, 가격이 고가이다. LiNiO

<sub>2</sub>는 방전용량이 가장 높으나, Ni<sup>2+</sup>에서 Ni<sup>3+</sup>로의 산화반응이 잘 일어나지 않아 재료합성에 어려움이 있다. 이러한 단점을 극복하고자 위 두가지 물질에 제 2의 전이금속을 첨가(doping)한 고용체 재료들이 새롭게 등장하였다. 이 중 가장 유망한 재료는 LiNi

<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub>로서 LiCoO<sub>2</sub>의 가격문제 및 LiNiO<sub>2</sub>의 합성조건 문제를 동시에 해결한 재료로 부각되고 있다. LiNi

<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub>는 결정구조도 LiCoO<sub>2</sub>와 동일하고 양이온 혼합(cation mixing)이 적고 전기화학적인 거동 및 충·방전 시의 가역성도 뛰어난 것으로 알려져 있으며, LiNiO<sub>2</sub>에 비해 합성 조건이 그렇게 까다롭지 않다. 또한 LiNi

<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub>는 상대적으로 낮은 3.6V 부근에 가역적인 충·방전 플래토우(plateau)가 나타나, 전해질 산화에 대한 염려가 적다.

그러나 LiNi<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub>는 제법에 따라 각양각색의 충·방전 거동을 보이는데 이는 제조시 리튬(Li), 코발트(Co) 및 니켈(Ni) 금속이온과의 혼합(cation mixing)때문에 방전용량 및 사이클(cycle)특성이 좋지 않다.

본 발명에서는 양이온 혼합(cation mixing)이 적은 LiNi<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub> 분말을 킬레이트제(chelating agent)로 폴리아크릴산 (polyacrylic acid)(PAA)을 사용하여 졸-겔법으로 제조하여 그 물화학적 특성 및 전지의 충·방전 특성을 향상시켰다.

LiNi<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub> 분말의 가장 일반적인 제조방법으로는 고상반응법인데, 이 방법은 각 구성원소의 탄산염 및 수산화물을 원료로 하여 이들의 분말을 혼합·소성하는 과정을 수 차례 거쳐 제조하는데, 이 방법의 단점은 혼합시 볼밀(ball mill)로부터의 불순물 유입이 많으며 불균일 반응이 일어나기 쉬워 균일한 상을 얻기 어렵고 분말입자의 크기를 일정하게 제어하기 곤란하여 소결성이 떨어지며, 제조시 높은 온도 및 제조시간이 길다.

한편, 세라믹 제조분야에서는 졸-겔(sol-gel)법이 개발되는 중이며, 그 개요는 금속알콕사이드를 용매에 용해 후 가수분해 및 중합반응을 통하여 졸(sol) 상태로 하고, 이 분산액의 온도, 농도 및 그 외의 조건을 변화시켜 겔(gel)화시켜서 건조 및 열처리 공정을 거쳐 세라믹 분말을 얻는 것이다. 그러나 금속전구체로 금속알콕사이드를 이용하는 경우 금속알콕사이드 가격이 너무 고가여서 경제성이 맞지 않는다. 따라서 최근에는 금속전구체로 금속 질산염(nitrate), 수산화염, 초산염(acetate) 및 황산염(sulfate)을 이용하고 킬레이트제(chelating agent)로 구연산 및 에틸렌글루콜을 이용한 구연산법, 페치니(pechini)법 등이 널리 연구되어 지고 있다.

높은 양극 성능을 얻기 위한 LiNi<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub> 분말 조건은 좋은 결정도(crystal linity), 균일성(homogeneity), 좁은 입자분포를 갖는 일정한 분말 형상 (morphology)등이다. 상기 조건은 충·방전이 계속되는 동안 미세구조의 변화를 억제하여 초기성능을 유지할 수 있기 때문이다. 본 발명에서는 금속전구체로 초산염을 킬레이트제(chelating agent)로 폴리아크릴산(Polyacrylic acid)을 각각 사용하여 겔(gel) 전구체로 만든 후, 이 겔(gel) 전구체를 300~850℃에서 5~30시간 열처리하여 LiNi

<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub> 분말을 얻었다. 폴리아크릴산(Polyacrylic acid)은 폴리머(polymer) 사슬 내에 금속 양이온들이 균일하게 분포되기 때문에 LiNi

<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>O<sub>2</sub>분말뿐만 아니라 거의 모든 세라믹 물질의 겔 전구체 생성이 가능하다. 위 방법으로 제조된 양극 활물질 LiNi

<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub> 분말에 아세틸렌 블랙(acetylene black)(도전재) 및 폴리비닐아이덴 플루오르화물(Polyvinylidene fluoride)(PVDF, 결합제)을 첨가하여 합성음극(composite cathode)을 제조하였다.

본 발명은 하기의 실시예에 의하여 보다 구체화된 것이며, 하기 실시예는 본 발명을 예시하기 위한 것으로, 본 발명의 보호 범위를 제한하고자 하는 것은 아니다.

실시예  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말의 제조: 리튬(Li), 코발트(Co) 및 니켈(Ni) 질산염을 1:0.5:0.5의 몰비로 정량하여 증류수에 녹인 후 폴리아크릴산(polyacrylic acid)대 총 금속이온 합 몰비가 1.0이 되게 수용액을 만들어 위 용액과 잘 섞는다. 상기 혼합용액을 자석교반기나 건조기에서 70~90℃로 유지하면서 가열하여 졸(sol)로 만든 후 이 졸을 서서히 가열하여 겔(gel)전구체로 만들었다. 이 겔전구체를 250~800℃에서 5~30시간동안 공기 분위기 하에서 소성하여  $\text{LiNi}$

$_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말을 얻었다. 이상의 제법을 제 1도에 나타내었다. 위 방법으로 제조된  $\text{LiNi}$

$_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  양극활물질 분말 85wt%에 아세틸렌 블랙(acetylene black)(도전재) 및 폴리비닐아이덴 플루오르화물(polyvinylidene fluoride)(PVDF, 결합제)을 각각 12wt%와 3wt%를 첨가하여 음극(cathode)혼합물을 제조하였다. 그 자세한 제법은 먼저 PVDF를 NMP용액에 녹인 후  $\text{LiNi}$

$_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말과 도전재를 잘 섞어 슬러리(slurry)로 만든 다음 알루미늄 호일(Al foil)위에 도포후 진공에서 건조시켜 제조하였다 전해질로 1M의  $\text{LiClO}_4$ 가 용해된 EC(ethylene carbonate) 및 PC(propylene carbonate)가 1:1의 몰비로 혼합된 용액을 사용하였다. 기준(reference) 및 상대(counter) 전극은 모두 순도 99.999%의 리튬 금속호일(foil)을 셀라드(Celard) 2400 막(membrane)을 분리계(separator)로 사용하였다. 사이클링(Cycling)에 따른 충·방전 실험은 전류밀도 0.25mA/cm

<sup>2</sup>의 정전류로 3.0~4.2V범위에서 수행하였다.

$\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$ 를 사용한 Li/1M  $\text{LiClO}_4$ -EC/DEC/ $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  전지의 충·방전 전류밀도 0.25mA/cm

<sup>2</sup>, 차단(cut-off) 전압 3.0~4.2V에서 사이클(cycle) 회수에 따른 방전용량을 제 5도에 나타내었다. 이때 사용된  $\text{LiNi}$

$_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$ 는 겔전구체를 750℃, 10시간 소성하여 제조하였다. 충전과 방전곡선 자의 1/2에 해당하는 편극(polarization)은 0.2V로 사이클(cycle) 회수에 따른 증가하지 않고 일정하였다. 초기 방전용량은 165 mAh/g를 보였으며, 사이클(cycle)회수에 따라 방전용량은 서서히 감소하지만 편극(polarization)은 일정한 값을 보이는데 이는 양극활물질의 성능감소 때문이 아니라 전해질 분해 때문이다. 따라서 Li/1M LiBF

<sub>4</sub>-EC/DEC/ $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  전지의 사이클 능력(cycleability)을 향상시키기 위해서는 산화가 일어나지 않는 적절한 전해질 선정이 필요하다.

TG-DAT 분석 및 결과: 본 실험으로 제조한 겔 전구체는 아주 투명하였으며 이는 겔 전구체의 균일성을 의미한다. 겔전구체로부터 세라믹으로의 변화 과정을 조사하기 위해 그 열분해 거동을 TG-DTA로 분석하여 그 결과를 제 2도에 나타내었다. 열분해에 사용된 겔전구체는 분석전 80℃에서 진공건조시켜 사용하였다. 겔전구체의 무게감소는 40℃~170℃, 170℃~320℃ 및 320℃~370℃의 세구간에서 일어났으며, 370℃에서 무게감량이 종결되었다. 40℃~170℃ 구간에서의 무게 감소는 겔전구체내의 물 증방에 기인한 것으로 DTA 곡선의 133℃ 및 170℃에서 나타나는 흡열피크에 대응된다. 170℃~320℃사이의 무게 감소는 겔전구체내의 질산 및 PAA와 같은 유기 및 무기물 분해에 기인한 것으로 DTA곡선의 192℃, 234℃, 252℃ 및 300℃ 발열피크들에 대응한다. 특히 234℃ 발열피크는 질산의 분해 때문이다. 320℃~370℃의 무게 감소는 겔전구체에 남아있는 유기물의 분해 때문이며, DTA 곡선의 350℃ 발열피크에 해당된다.

겔전구체를 500℃, 600℃, 700℃ 및 850℃에서 1시간동안 공기 분위기에서 열처리한 시료의 엑스-레이 회절선(X-ray diffraction pattern)을 제 3도에 나타내었다. 500℃에서 소성한 시료의 경우,  $\text{LiNi}$

$_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$ 상 뿐만 아니라 약간의 불순물상이 관찰되었다. 600℃에서 소성한 시편의 경우 고온상이라고 불리는 HT- $\text{LiNi}$

$_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$ 가 생산되었다. 소성온도가 증가할수록 XRD 피크는 뾰족(sharp)하고 높은 회절피크를 나타내는데, 이는  $\text{LiNi}$

$_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말의 높은 결정도를 나타낸다. 이 결과는 본 발명인 졸-겔(sol-gel)법이 800~1000℃에서 24시간 이상 소성해서 제조하는 고상반응법보다 소성온도가 낮고 제조시간이 짧게 걸린다는 것을 의미한다.

이는 킬레이트제(chelating agent)로 폴리아크릴산(Polyacrylic acid)을 사용한 졸-겔법은 출발시료가 원자 크기로 균일하게 혼합되었고, 입자크기가 매우 작기 때문에 구조 생성의 반응속도가 증가하여 소결성을 향상시켰기 때



문이다. 제 4도 (그림 4)에 겔전구체를 공기 분위기 하에서 500℃, 600℃ 및 750℃ 에서 1시간동안 소성한 분말의 SEM 사진을 나타내었다. 500℃에서 소성한 분말의 표면은 입자 평균크기가 40nm를 갖는 응집된 균일한 구형 입자로 구성되어 있었다. 소성온도가 증가하면 분말의 결정성장 속도가 증가하여 응집된 입자들이 하나의 큰 입자로 성장하였다. 750℃로 열처리한 경우, 입자크기는 2μm로 증가하였으며, 그 입자 분포는 아주 균일하였다.

본 발명의 단순한 변형 내지 변경은 이 분야의 통상의 지식을 가진 자에 의하여 실시될 수 있으며, 이러한 변형이나 변경을 모두 본 발명의 영역에 포함되는 것으로 볼 수 있다.

### (57)청구의 범위

#### 청구항1

리튬(Li)염, 코발트(Co)염 및 니켈(Ni)염을 금속 전구체로 사용하고 폴리아크릴산(polyacrylic acid)을 킬레이트제로 사용하여 겔전구체를 제조하고; 그리고 상기 겔전구체를 250~800℃에서 5~30시간동안 불활성 기체 또는 공기 분위기에서 소성하는;단계로 이루어지는 것을 특징으로 하는 리튬이차전지의 양극활물질로 사용되는  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말의 제조방법.

#### 청구항2

제 1항에 있어서, 상기  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$ 에서 x가 0내지 1인 범위를 특징으로 하는것.

#### 청구항3

제 1항에 있어서, 상기 리튬(Li)염, 코발트(Co)염 및 니켈(Ni)염이 질산염, 수산화염 또는 초산염인 것을 특징으로 하는  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  분말의 제조방법.

#### 청구항4

리튬(Li), 코발트(Co) 및 니켈(Ni)을 금속 전구체로 사용하고, 폴리아크릴산(polyacrylic acid)을 킬레이트제로 사용하여 겔전구체를 제조하고, 상기 겔전구체를 250~800℃에서 1~30시간동안 불활성 기체 또는 공기 분위기에서 소성하여 제조된 리튬이차전지의 양극활물질로 사용되는  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$ 분말.

#### 청구항5

제 4항에 있어서, 상기 리튬(Li)염, 코발트(Co)염, 및 니켈(Ni)염이 질산염, 수산화염 또는 초산염인 것을 특징으로 하는  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$ 분말.

#### 청구항6

제 4항의  $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$  (여기서,  $x=0\sim 1$ ) 분말을 양극 활물질로 사용한 리튬이차전지.

#### 청구항7

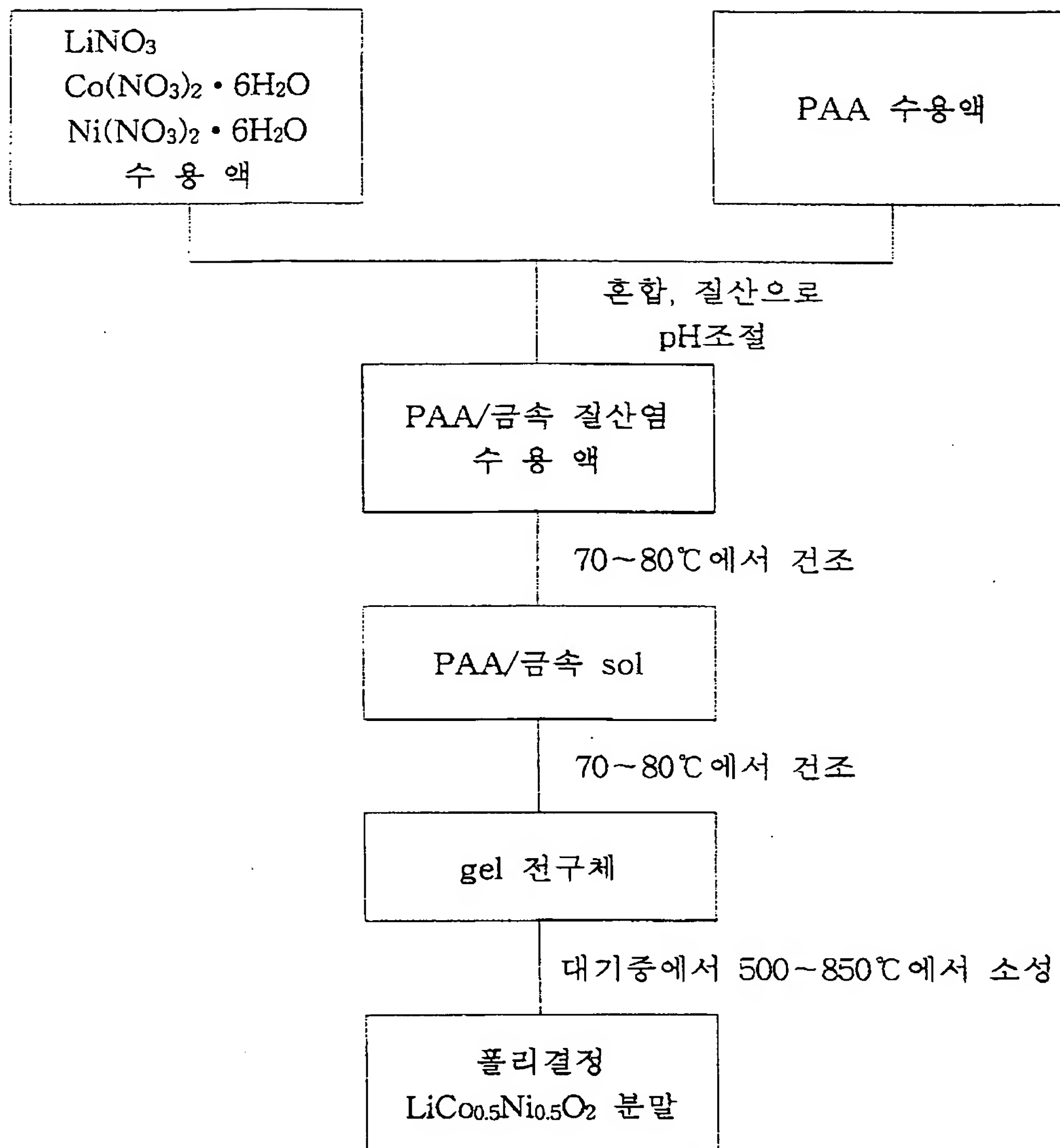
리튬(Li), 코발트(Co)및 니켈(Ni)의 질산염 혹은 그 일부를 수산화염 또는 초산염 형태의 수용액과 폴리아크릴산(polyacrylic acid) 수용액을 혼합하여 가열후 생성된  $\text{LiNi}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_2$  ( $\text{M}=\text{Ga}, \text{Ge}, \text{Mo}, \text{W}, \text{In}, \text{Sn}$ )의 졸 및 겔을 사용하여 제조된 박막.

#### 청구항8

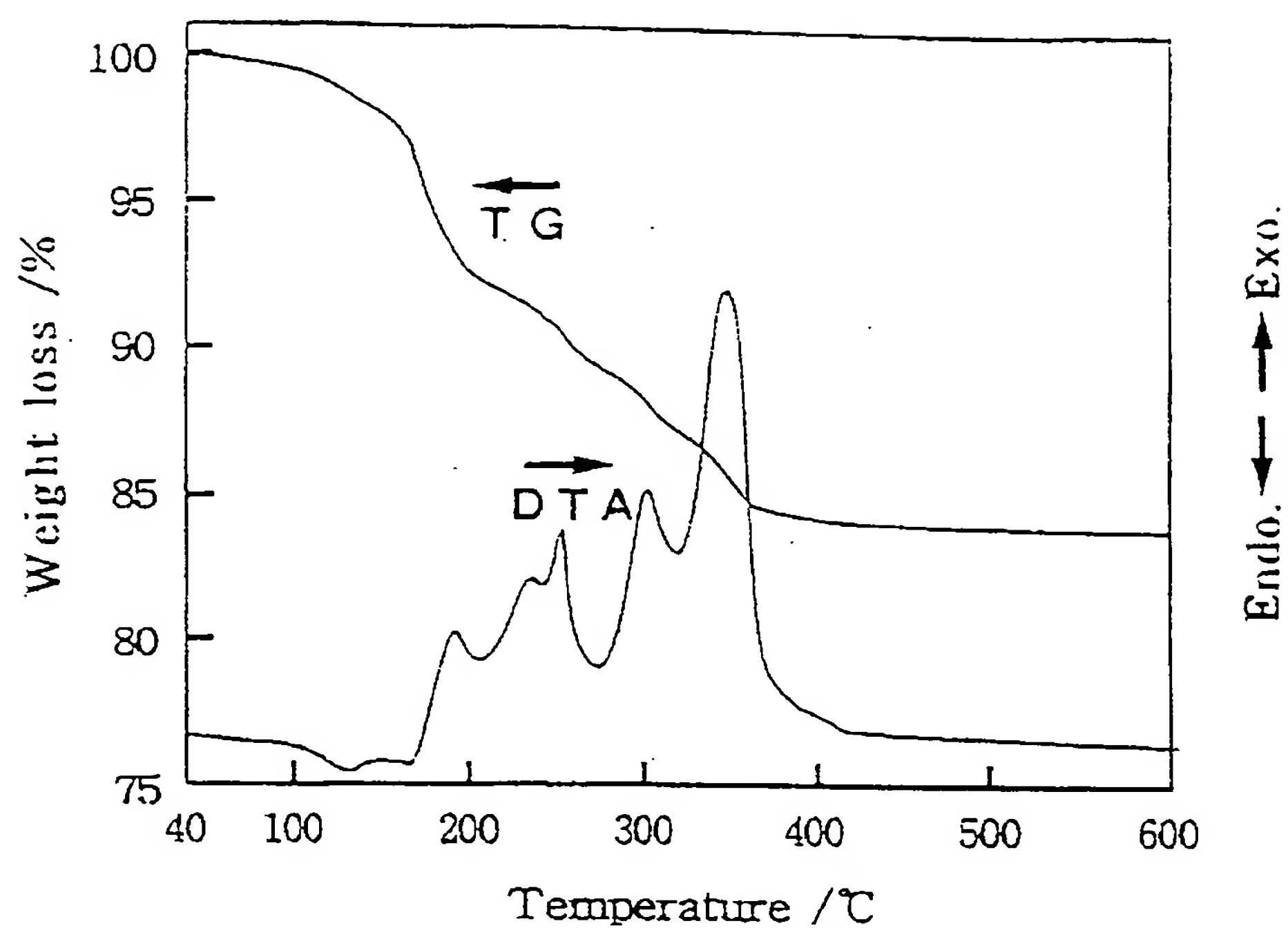
제 1항에 내지 제 3항의 어느 한 항에 의하여 제조된 양극 활물질  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{O}_2$  분말에 아세틸렌 블랙(acetylene black)(도전재) 및 폴리비닐아이덴 플루오르화물(polyvinylidene fluoride)(PVDF,결합제)을 첨가하여 제조된 합성 음극(composite cathode).

### 도면

#### 도면1

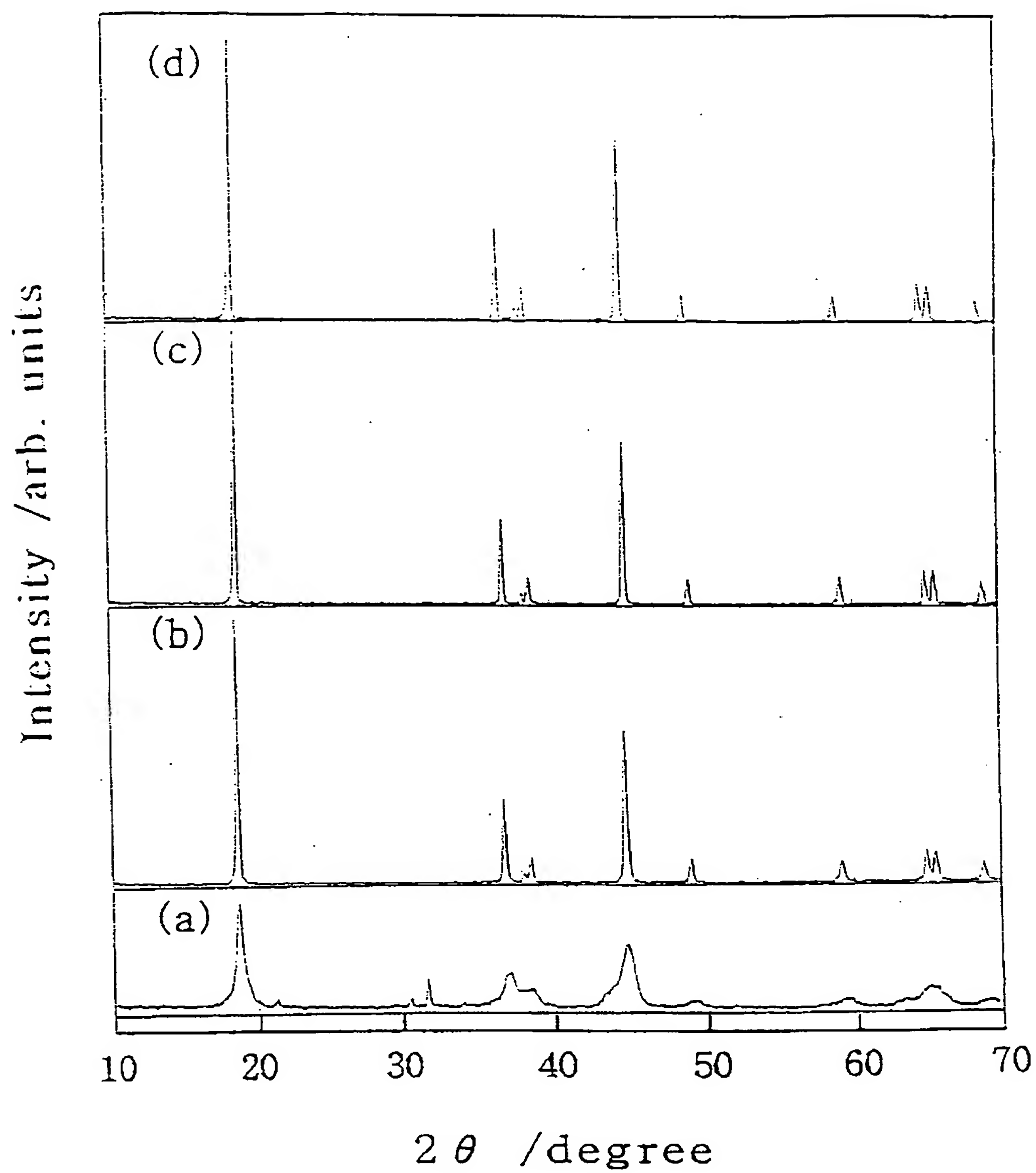


도면2

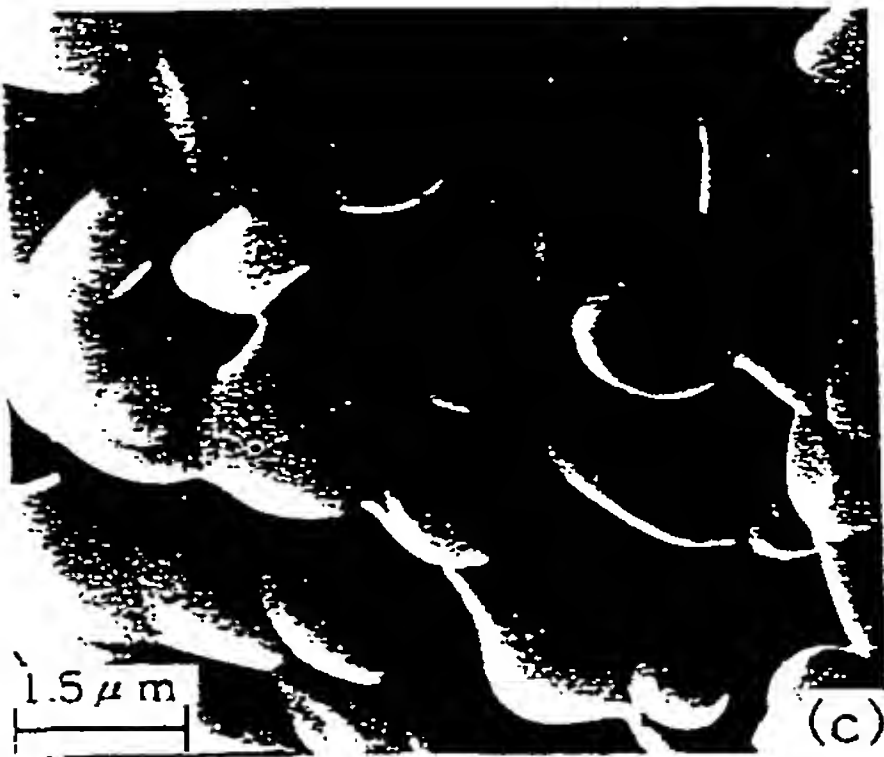
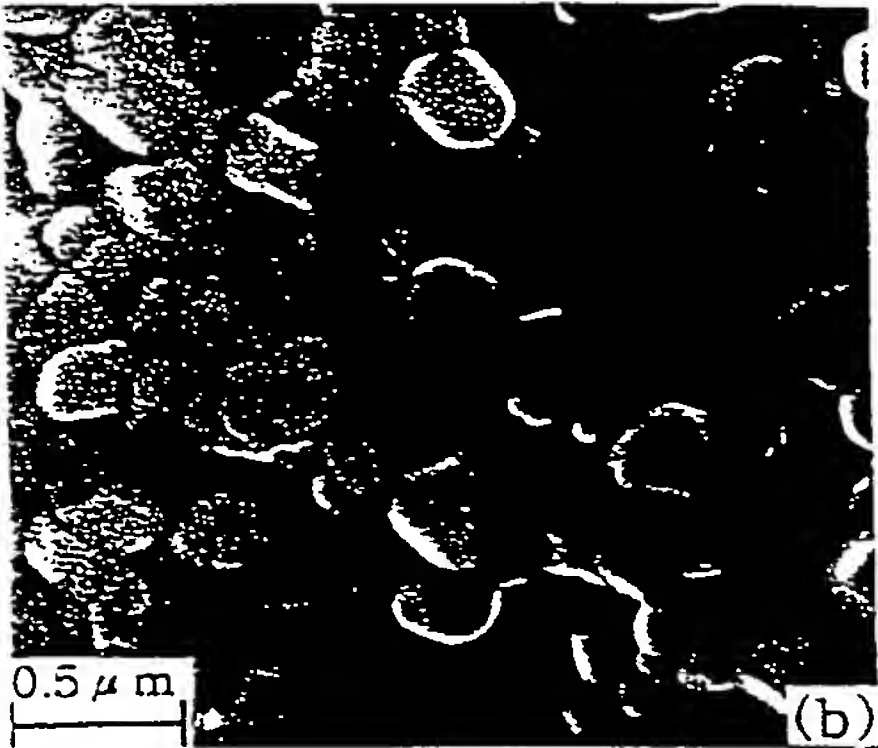


도면3

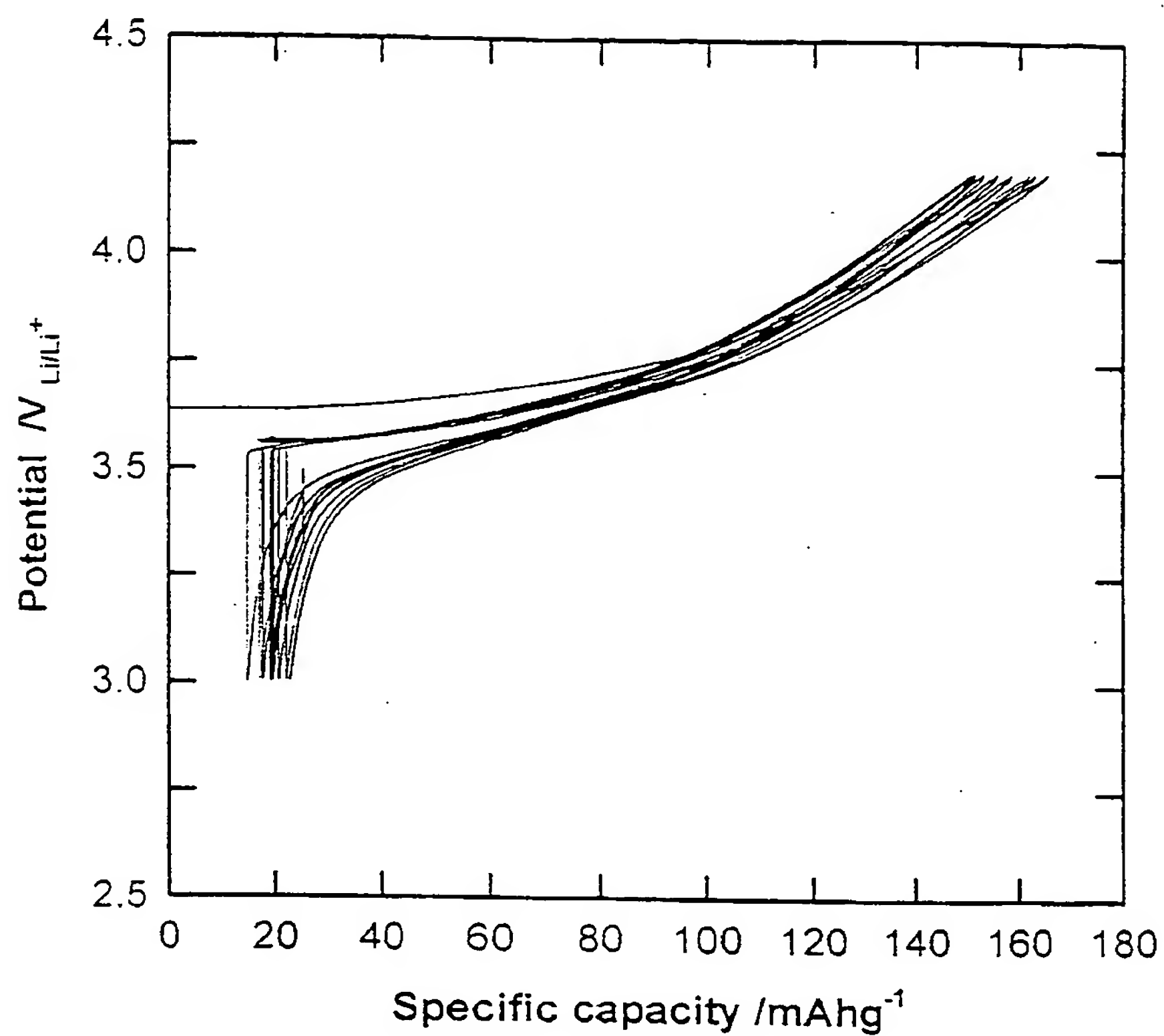




도면4



도면5a



도면5b

